

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-338651

(43)Date of publication of application : 07.12.2001

(51)Int.Cl.

H01M 4/86

H01M 8/02

H01M 8/10

(21)Application number : 2000-160056

(71)Applicant : SANYO ELECTRIC CO LTD

(22)Date of filing : 30.05.2000

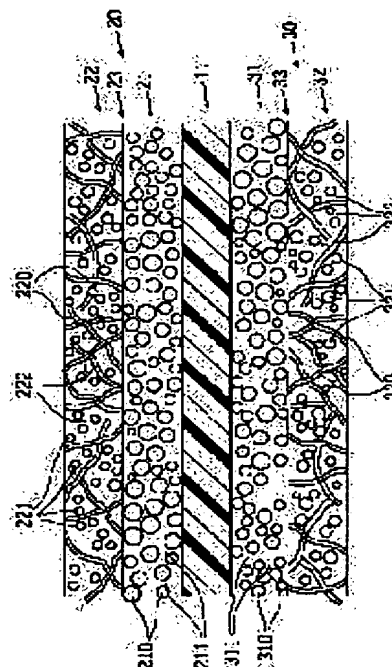
(72)Inventor : ISONO TAKAHIRO  
KABUMOTO HIROKI  
KONNO YOSHITO  
YONEZU IKURO

## (54) ELECTRODE FOR FUEL CELL AND FUEL CELL

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To improve cell characteristics, such as a cell voltage, by preventing stay of water in an electrode layer, especially stay of water near an interface of a gas diffusion layer and a catalyst layer in a fuel cell.

SOLUTION: In an anode 20, both pores 211 in a catalyst layer 21 and pores 222 in a gas diffusion layer 22 are set to have a diameter distribution so that it may have a peak in a range of 0.1  $\mu\text{m}$  or less. Moreover, also in a cathode 30, both diameter distributions of pores 311 and pores 32 are set to have a peak in a range of 0.1  $\mu\text{m}$  or less.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

31.07.2000

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

BEST AVAILABLE COPY

[Kind of final disposal of application other than  
the examiner's decision of rejection or  
application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3459615

[Date of registration] 08.08.2003

[Number of appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-338651

(P2001-338651A)

(43) 公開日 平成13年12月7日 (2001.12.7)

(51) Int.Cl.<sup>7</sup>

識別記号

F I

テームト<sup>\*</sup>(参考)H 0 1 M 4/86  
8/02  
8/10H 0 1 M 4/86  
8/02  
8/10M 5 H 0 1 8  
E 5 H 0 2 6

審査請求 有 請求項の数 5 O L (全 10 頁)

(21) 出願番号 特願2000-160056(P2000-160056)

(22) 出願日 平成12年5月30日 (2000.5.30)

(71) 出願人 000001889

三洋電機株式会社

大阪府守口市京阪本通2丁目5番5号

(72) 発明者 磯野 隆博

大阪府守口市京阪本通2丁目5番5号 三

洋電機株式会社内

(72) 発明者 株本 浩博

大阪府守口市京阪本通2丁目5番5号 三

洋電機株式会社内

(74) 代理人 100090446

弁理士 中島 明朗

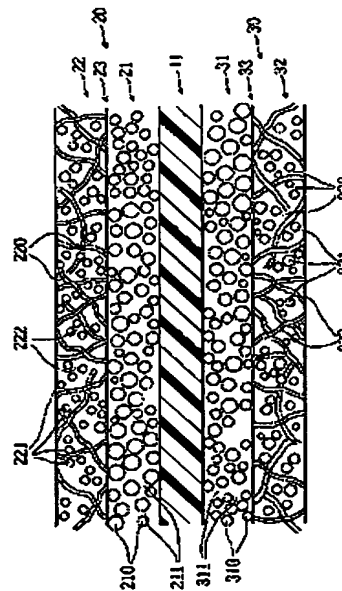
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 燃料電池用電極及び燃料電池

(57) 【要約】

【課題】 燃料電池において、電極層内における水の滞留、特にガス拡散層と触媒層との界面付近における水の滞留を防止することによって、セル電圧などの電池特性を向上させる。

【解決手段】 アノード20において、触媒層21における気孔211の気孔径並びにガス拡散層22における気孔222の気孔径は共に、気孔径分布が0.1  $\mu\text{m}$ 以下の範囲にピークを有するように設定されている。また、カソード30においても、気孔311及び気孔322の気孔径分布が共に、0.1  $\mu\text{m}$ 以下の範囲にピークを有するように設定されている。



(2)

特開2001-338651

1

2

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 触媒層とガス拡散層とが積層されてなる燃料電池用電極であって、

前記ガス拡散層及び触媒層は共に、その気孔径分布が0.1  $\mu\text{m}$ 以下の範囲にピークを有することを特徴とする燃料電池用電極。

【請求項2】 前記ガス拡散層及び触媒層は共に、その気孔径分布が0.03～0.05  $\mu\text{m}$ の範囲にピークを有することを特徴とする請求項1記載の燃料電池用電極。

【請求項3】 前記ガス拡散層の気孔径分布が0.1  $\mu\text{m}$ 以下の範囲に有するピークの気孔径と、前記触媒層の気孔径分布が0.1  $\mu\text{m}$ 以下の範囲に有するピークの気孔径との比率の中に、0.5～2の範囲内にあるものが含まれていることを特徴とする請求項1記載の燃料電池用電極。

【請求項4】 前記ガス拡散層は、多孔性カーボン基体中にカーボン粉末を充填した構造であることを特徴とする請求項1～3のいずれか記載の燃料電池用電極。

【請求項5】 電解質膜の一方の面にカソード触媒層、他方の面にアノード触媒層が配されてなるセルを、前記アノード触媒層に対向して燃料ガスが流通する燃料ガス流路が形成された第1プレートと、前記カソード触媒層に対向して酸化ガスが流通する酸化剤ガス流路が形成された第2プレートとで挟持した構成であって、前記アノード及びカソードの少なくとも一方に、請求項1～4の何れか記載の燃料電池用電極を用いたことを特徴とする燃料電池。

## 【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、燃料電池に関し、特に、固体高分子型燃料電池をはじめとしてセル内に液体の水が存在し得る燃料電池に関する。

【0002】

【従来の技術】燃料電池は一般的に、電解質膜を介してカソードとアノードを対向して配したセルが、リブ及びガスチャネルが形成された一対のプレート基板で挟持されたものを基本ユニットとし、この基本ユニットを複数積重ねた構造であって、カソード側のチャネルに酸化剤としての空気を、アノード側のチャネルに燃料ガスを供給し、電気化学的に反応させて発電を行うようになっている。

【0003】燃料電池の中でも、電解質膜としてイオン交換膜が用いられた固体高分子型燃料電池は、低温で優れた性能で運転できる点で最近注目されている。この固体高分子型燃料電池は、運転時にはイオン交換膜のイオン導電性を確保する必要があるため、従来から空気や燃料ガスを加湿して供給したり、燃料ガスのチャネルに水を供給したりすることによって、固体高分子膜を保湿す

る方法が多くとられている。

【0004】そして、この固体高分子型燃料電池において、セル電圧などの電池特性を得るために、イオン交換膜全体を湿潤させると共にアノード及びカソードの触媒層全体に燃料ガスや酸化剤ガスを均一に行き渡らせることも必要である。その点を考慮して、カソード及びアノードの各々は、通常、固体高分子膜に接して配された触媒層の上にカーボンペーパーなどからなるガス拡散層が積層されて構成されており、このような電極構成によれば、各チャネルを流通するガスがガス拡散層を介して触媒層に供給されるので、触媒層全体にガスが行き渡りやすくなっている。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、この電極構成の固体高分子型燃料電池においても、電極層内に水が滞留することによって、触媒層の反応サイトが水で覆われて触媒層の反応面積が減少する他、触媒層の反応サイトにガスが行き渡りにくくなるため、セル電圧が低下するという問題がある。

20 【0006】これに対して、特開平10-289732号公報では、ガス拡散層にカーボン粉末などを充填することによって、ガス拡散性と水拡散性を両立させる手法が提案され、特開平10-356447には、ガス拡散層に好ましくは20～100nmの気孔を形成することによって、排水性を向上すると共にガス拡散性を向上させる手法が提案されている。また、特開平8-117598号公報には、DBP給油量が200～650ml/100gのカーボンブラックを触媒層の担体として用いることによって触媒層のガス拡散性を改善する手法が提案されている。

30 【0007】これらの手法を用いれば、触媒層内における水の滞留を防止する効果、並びにガス拡散層内における水の滞留を防止する効果が得られるため、有効な技術とは考えられるが、ガス拡散層と触媒層との界面付近における水の滞留を防止することについては特に考慮されておらず、加湿量が大きい場合などにはこの界面付近に水が滞留しやすいものと考えられる。

40 【0008】このような点で、固体高分子型燃料電池において、更に良好な電池特性を得るために、改良の余地があるものと考えられる。なお、このような課題は、触媒層とガス拡散層とが積層された電極を備え、低温で運転する燃料電池においては、共通するものと考えられる。本発明は、このような課題を鑑みてなされたものであって、燃料電池において、電極層内における水の滞留、特にガス拡散層と触媒層との界面付近における水の滞留を防止することによって、セル電圧などの電池特性を向上させることを目的とするものである。

【0009】

50 【課題を解決するための手段】上記目的を達成するため本発明では、触媒層及びガス拡散層が積層されてなる燃

(3)

特開2001-338651

3

料電池用電極において、ガス拡散層及び触媒層を、その気孔径分布が共に $0.1\mu\text{m}$ 以下のピークを有するように、好ましくは $0.03\mu\text{m}$ 以上 $0.05\mu\text{m}$ 以下の範囲にピークを有するように調整した。

【0010】気孔の中でも、気孔径が $0.1\mu\text{m}$ 以下のもの、特に $0.05\mu\text{m}$ 以下のものは、毛管現象によって水を移動させる作用が強い。従って、触媒層及びガス拡散層の気孔径分布が共にこの範囲にピークを持っていれば、触媒層及びガス拡散層共に、水を移動させる作用が強くなるので、触媒層及びガス拡散層の界面付近にも水が滞留しにくい。一方、気孔径が $0.03\mu\text{m}$ 未満のところにピークがあると、気孔径が小さすぎるためにガス拡散性が低くなる傾向がある。

【0011】また、ガス拡散層と触媒層との界面における水の移動に関して考慮すると、ガス拡散層の気孔と触媒層の気孔との径の比率が $0.5\sim 2$ の範囲内であれば両気孔間で水は移動しやすい。従って、上記ガス拡散層の気孔径分布のピークと、触媒層の気孔径分布とのピークとの組み合わせの中に、気孔径の比率が $0.5\sim 2$ の範囲内にあるものが含まれていれば、触媒層とガス拡散層との界面における水の移動がスムーズとなるので、更に触媒層及びガス拡散層の界面付近に水が滞留しにくくなる。

【0012】このような燃料電池用電極を燃料電池に用いると、電極に水が滞留しにくいので高いセル電圧を得ることができる。特にカソード側に、本発明の燃料電池用電極を用いれば、大きな効果が見込める。

【0013】

【発明の実施の形態】図1は、固体高分子型燃料電池1の構成を示す要部組立図である。燃料電池1は、セルユニット100が多数積層され、その積層両端は図示しないエンドプレートで挟持されており、セルユニット100が複数積層されることに冷却プレート110が介挿された構成となっている。

【0014】各セルユニット100は、固体高分子膜11の一方にアノード20が他方にカソード30が形成されてなるセル10が、アノード側チャンネル41が形成されたセパレータ板40（図1では、アノード側チャンネル41は、セパレータ板の背面側にあり見えない。図2参照。）とカソード側チャンネル51が形成されたセパレータ板50とで挟持されて構成されており、固体高分子膜11の外周部と、セパレータ板40、50の外周部との間には、この部分をシールするガスケット60、70が介挿されている。

【0015】固体高分子膜11は、陽イオン交換樹脂（パーフルオロカーボンスルホン酸）からなる薄膜であって、例えばNaflon膜（デュボン社製）である。アノード20及びカソード30は、共に白金系の触媒が担持されたカーボンからなる触媒層と、浸水処理を施したカーボンペーパーにカーボン粒子が充填されたガス拡散

4

層とが積層された構造であって、固体高分子膜11の中央部にホットプレスにより密着成型されている。

【0016】セパレータ板40、50は、緻密なカーボン板を加工した導電性を有する基板である。冷却プレート110も同様に、導電性の緻密な基板である。固体高分子膜11、セパレータ板40、50および冷却プレート110の各々のコーナー部分には、反応ガス供給・排出用のマニホールドを構成する貫通孔P1～P4が開設されている。なお、貫通孔P2、P4はセパレータ板40のアノード側チャンネル41と連通し、貫通孔P1、P3はセパレータ板50のカソード側チャンネル51と連通している。また、各プレートの一対の対向する辺の中央部に冷却水流入・流出用マニホールドを構成する貫通孔P5、P6が開設されており、貫通孔P5、P6は冷却プレート110に設けられた冷却水流路111と連通している。

【0017】このような構造の燃料電池1において、燃料ガス供給用のマニホールドには燃料ガスが供給され、酸化剤ガス供給用マニホールドには空気が供給される。なお、燃料ガスとしては通常、水素リッチな改質ガスや純粋な水素ガスなどが用いられる。そして、アノードガス供給用のマニホールドに供給された燃料ガスは、各アノード側チャンネル41に分配され反応に供給される。また、この燃料ガスは、図示しない加湿装置によって加湿されており、この燃料ガス中に含まれる水分によって固体高分子膜11が湿潤されるようになっている。

【0018】一方、酸化剤ガス供給用マニホールドに供給された空気は、各カソード側チャンネル51からカソード30に供給される。そして、余剰のガスは酸化剤ガス排出用のマニホールドから排出される。なお、この空気も加湿器で加湿してから供給される場合が多い。また、冷却水流入用マニホールドには冷却水が供給され、当該マニホールドに供給された冷却水は、各冷却水流路111に分配される。

【0019】燃料電池1は、発電に伴って発熱するが、この冷却水で冷却されることによって所定の運転温度（ $70\sim 80^\circ\text{C}$ ）に維持される。

（アノード及びカソードの構成についての詳細説明）図2は、セルユニット100の概略断面図である。アノード20における触媒層21は、白金系触媒を担持したカーボン粒子とイオン交換樹脂とを混合した混合物が、固体高分子膜11の表面に層状に充填されたものであり、ガス拡散層22は、ふっ素樹脂等を用いて浸水処理を施した多孔質カーボンペーパーの孔内に、カーボン粒子と浸水性樹脂とが混合された混合物が充填された層である。

【0020】また、カソード30における触媒層31もこれと同様の構成であって、白金系触媒を担持したカーボン粒子とイオン交換樹脂とを混合した混合物が、固体高分子膜11の表面に層状に充填されたものであり、ガス拡散層32は、浸水処理を施した多孔質カーボンペー

(4)

特開2001-338651

5

バの孔内に、カーボン粒子と親水性樹脂とが混合された混合物が充填された層である。

【0021】図3は、アノード20及びカソード30の内部構造を模式的に示す断面模式図である。本図に示すように、アノード20において、触媒層21の内部は、触媒が担持されたカーボン粒子の表面にイオン交換樹脂が付着した粒状物210が充填された構造となっている。そして、粒状物210同士は互いに結合していると共に、相互の間には気孔211が形成されている。またガス拡散層22は、カーボンペーパーを構成するカーボン繊維220同士の間に、カーボン粒子221が充填された構造となっている。そして、カーボン粒子221同士は結着材（不図示）によって結合しており、各カーボン粒子221同士の間には気孔222が形成されている。

【0022】触媒層21における気孔211の気孔径並びにガス拡散層22における気孔222の気孔径は、主にこれに用いられるカーボン粒子の性質（比表面積、粒子径など）によって決められるが、これら気孔211及び気孔222の気孔径は共に、気孔径分布が0.1μm以下の範囲にピークを有するように設定されている。なお、0.1μm以下の範囲におけるピークの数は、1個でもよいし2個以上でもよい。

【0023】また、ピークの大きさについては特に限定されず、ノイズではなくピークと認められるものであればよいが、実質的な効果を奏するには、気孔径分布において、0.1μm以下のピーク面積が、全体のピーク面積の5%以上を占めることが好ましい。また、カソード30の内部構造もアノード20と同様である。

【0024】即ち、触媒層31の内部は、触媒が担持されたカーボン粒子の表面にイオン交換樹脂が付着した粒状物310が充填されており、粒状物310同士は互いに結合していると共に互いの間に気孔311が形成されている。ガス拡散層32は、カーボン繊維320同士の間に、カーボン粒子321が充填され結着材で結合した構造となっており、カーボン粒子321同士の間に気孔322が形成されている。

【0025】そして、気孔311及び気孔322の気孔径分布が共に、0.1μm以下の範囲にピークを有するように設定されている。（本実施形態のアノード及びカソードによる効果についての説明）アノード側チャンネル41に供給される燃料ガスは、アノード20のガス拡散層22を透過して触媒層21において反応（ $2H_2 \rightarrow 4H^+ + 4e^-$ ）に用いられる。また、この燃料ガスに含まれる水分の一部は、ガス拡散層22、触媒層21及び固体高分子膜11を透過してカソード30側に移動する。

【0026】ところで、燃料ガスがアノード20を通過する際に、燃料ガスに含まれる水分の一部はアノード20内で凝集する。ここで、アノード20の層内を液体の

6

水がスムーズに移動できれば、凝集した水がアノード20層内に滞留することはないが、アノード20の層内を液体の水がスムーズに移動できないならば、凝集した水がアノード20層内に滞留することになる。

【0027】一方、カソード側チャンネル51に供給される空気は、カソード30のガス拡散層32を透過して触媒層31において反応（ $4H^+ + O_2 + 4e^- \rightarrow 2H_2O$ ）に用いられる。また、この反応に伴う生成水並びにアノード20側から移動してくる水は、触媒層31及びガス拡散層32を透過してカソード側チャンネル51を流過する空気中に拡散するが、カソード30内において水の一部は液体として存在するので、カソード30の層内を液体の水がスムーズに移動できないならば、液体の水がカソード30層内に滞留することになる。

【0028】そして、アノード20やカソード30の層内に液体の水が多く滞留すると、触媒層21や触媒層31の反応サイトが有効な反応面積が減少する他に、燃料ガスや空気が触媒層21や触媒層31の反応サイトに行き渡りにくくなる。従って、アノード20やカソード30の層内における液体水の滞留は、セル電圧の低下を引き起こす原因となる。

【0029】特に、カソード30側においては、液体の水が滞留することによってセル電圧が低下する現象が生じやすく、アノード20側においても、燃料ガスの加圧値が大きい場合には、液体水が滞留することによってセル電圧を低下させる現象は生じやすい。しかしながら、本実施の形態のアノード20においては、触媒層21及びガス拡散層22の気孔径分布が共にこの範囲にピークを持っているため、触媒層21及びガス拡散層22共に、水を移動させる作用は強くなっている。気孔径が0.1μm以下の気孔は毛管現象によって水を移動させる作用が強いからである。

【0030】従って、アノード20は、触媒層21とガス拡散層22のいずれにも水が滞留しにくい構造となっており、そのため、触媒層21とガス拡散層22との界面23付近においても水は滞留しにくい。また、本実施の形態のカソード30においても、同様に、触媒層31及びガス拡散層32の気孔径分布が共にこの範囲にピークを持っているため、触媒層31及びガス拡散層32共に、水を移動させる作用は強くなっている。

【0031】従って、カソード30は、触媒層31及びガス拡散層32のいずれにも内部に水が滞留しにくい構造となっており、そのため、触媒層31とガス拡散層32との界面33付近においても水は滞留しにくい。このような効果を更に高めるために、アノード20においては、触媒層21の気孔径分布のピークの中で気孔径0.1μm以下のものと、ガス拡散層22の気孔径分布のピークの中で気孔径0.1μm以下のものとを組み合わせの中に、気孔径の比率が0.5～2の範囲内にあるもの

(5)

特開2001-338651

7

8

が含まれていることが好ましい。

【0032】これは、界面23を挟んで対向する気孔211及び気孔222どうしの気孔径の差が大きい場合には水が移動しにくい、この気孔径の差が小さい場合（気孔径の比率が0.5～2の範囲内にある場合）には、両気孔間を水がスムーズに移動できる（水の流れ抵抗が小さい）ためである。なお、触媒層21の気孔径分布やガス拡散層22の気孔径分布が、気孔径0.1μm以下のピークを複数有する場合には、上記組み合わせの中に、気孔径の比率が0.5～2の範囲内にあるものが1つでも含まれていれば良い。

【0033】またこれと同様に、カソード30においても、触媒層31の気孔径分布のピークの中で0.1μm以下のものと、ガス拡散層32の気孔径分布のピークの中で0.1μm以下のものとの組み合わせの中に、気孔径の比率が0.5～2の範囲内にあるものが含まれていることが好ましい。そして、更にこのような効果を見るために、アノード20においては、触媒層21及びガス拡散層22の気孔径分布が0.03～0.05μmの範囲にピークを有するように、また、カソード30においては、触媒層31及びガス拡散層32の気孔径分布が0.03～0.05μmの範囲にピークを有するように調整することが好ましい。

【0034】これは、気孔径が0.03～0.05μmの範囲にある気孔は、特に毛管現象によって水を移動させる作用が強いためである。（実施の形態についての変形例など）なお、上記のように触媒層及びガス拡散層の気孔径を調整することは、アノード20及びカソード30の両方について行うことが好ましいが、アノード20

及びカソード30のどちらか一方だけに適用することも可能である。

【0035】但し、一般的に固体高分子型燃料電池では、アノード側よりもカソード側の方に水が滞留しやすいので、少なくともカソード側には適用することが望ましい。また、本実施形態では、触媒層やガス拡散層にカーボン粒子を充填することによって気孔径を調整する例を示したが、カーボン粒子以外に、例えばシリカ粒子を触媒層やガス拡散層に用いても同様に実施することができ、同様の効果が期待できる。

【0036】また、本実施形態では、燃料ガス及び酸化剤ガスの少なくとも一方を燃料電池外部で加湿してから供給する固体高分子型燃料電池を例にとって説明したが、燃料電池内に液体の水を供給して加湿する内部加湿型の固体高分子型燃料電池や、燃料ガス及び酸化剤ガスを加湿することなく供給しながら運転する固体高分子型燃料電池においても適用することができ、同様の効果を奏する。

【0037】また、本発明は、セル内に液体の水が存在し得る燃料電池に適用すれば、同様の効果を奏する、例えば、燃料ガスを用いて運転する固体高分子型燃料電池だけでなく、例えば、アノード側にメタノール水溶液を供給しながら運転する直接メタノール型燃料電池（DMFC）に適用したり、リン酸型燃料電池に適用することによっても、同様の効果が期待できる。

【0038】

【実施例】

【0039】

【表1】

(6)

特開2001-338651

9

10

		ガス拡散層		触媒層		セル電圧
		カーボン種	主ピーク位置 (気孔径)	カーボン担体 種	主ピーク位置 (気孔径)	
比較 例	セル1	なし	30 $\mu\text{m}$	KJ-EC	0.04 $\mu\text{m}$	590 mV
	セル2	なし	30 $\mu\text{m}$	BP	0.02 $\mu\text{m}$	570 mV
実 施 例	セル3	KJ-EC	10 $\mu\text{m}$ 0.03 $\mu\text{m}$	KJ-EC	0.04 $\mu\text{m}$	715 mV
	セル4	KJ-EC	10 $\mu\text{m}$ 0.03 $\mu\text{m}$	BP	0.02 $\mu\text{m}$	650 mV
	セル5	BP	10 $\mu\text{m}$ 0.01 $\mu\text{m}$	KJ-EC	0.04 $\mu\text{m}$	620 mV
	セル6	Vulcan	10 $\mu\text{m}$ 0.05 $\mu\text{m}$	KJ-EC	0.04 $\mu\text{m}$	715 mV
	セル7	Vulcan	10 $\mu\text{m}$ 0.05 $\mu\text{m}$	Vulcan	0.08 $\mu\text{m}$	700 mV
	セル8	Vulcan	10 $\mu\text{m}$ 0.05 $\mu\text{m}$	DB	0.09 $\mu\text{m}$	700 mV
	セル9	Vulcan	10 $\mu\text{m}$ 0.05 $\mu\text{m}$	BP	0.02 $\mu\text{m}$	610 mV
	セル10	Vulcan	10 $\mu\text{m}$ 0.05 $\mu\text{m}$	KJ-JD	0.03 $\mu\text{m}$	690 mV

以下のようにして、表1に示す実施例の各種セルを作製した。固体高分子膜としては、Nafion112膜（デュボン社製、厚さ50  $\mu\text{m}$ ）を用いた。

【0040】触媒層（触媒層21及び触媒層31共通）40  
の作製：表1に示すカーボン粉末に、白金を担持させて白金担持カーボンを作製し、この白金担持カーボンにNafion溶液を重量比100：30の割合で混合してペーストを作製した。そして、このペーストを、テフロン（登録商標）シート上に塗布することによって、厚さ20  $\mu\text{m}$ の触媒層を形成した。

【0041】ガス拡散層（ガス拡散層22及びガス拡散層32共通）の作製：カーボンペーパー（厚さ200  $\mu\text{m}$ ）を、テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体（FEP）分散溶液に浸漬し、380℃ 50

で1時間焼成することによって脱水処理を施した。また、表1に示すカーボン粉末と、ポリテトラフルオロエチレン（PTFE）とを混合してカーボンペーストを作製した。

【0042】表1に示す「KJ-EC」はケッチェンブラックEC（ライオン株式会社製、給油量360 cc/100 g）、「BP」はブラックパール2000（キャボット製、給油量105 cc/100 g）、「Vulcan」はVulcan XC72（キャボット製、給油量174 cc/100 g）、「DB」はデンカブラック（電気化学工業株式会社製、給油量180 cc/100 g）、「KJ-JD」はケッチェンブラック600JD（ライオン株式会社製、給油量495 cc/100 g）である。

(7)

特開2001-338651

11

【0043】そして、上記浸水処理したカーボンペーパーに、上記カーボンペーストを充填することによって、ガス拡散層22を作製した。以上のように作製したガス拡散層及び触媒層の気孔径分布を測定した。この気孔径分布は、気孔径に対する気孔容積の変化を示すものであって、実施例のセル6の触媒層およびガス拡散層について、その気孔径分布をそれぞれ図4(a)、図4(b)に例示している。

【0044】この気孔径分布の測定は、島津製作所製ポアサイザ9310を用いて水銀圧入法で行った。このようにして得られた各セルのガス拡散層及び触媒層についての気孔径分布においては、表1に示す位置（気孔径の値）に主たるピークが見られた。例えば、セル6のガス拡散層の気孔径分布においては、図4に示すように、気孔径0.1~100μmの範囲内にたくさんのピークが存在し、特に、気孔径10μm付近に大きなピークが存在している。また、気孔径0.1μm以下の範囲においては、気孔径0.04μmにピークが存在している。

【0045】そして表1においては、主たるピークとして、気孔径0.1~100μmの範囲にある代表的なピークの値（気孔径）と、気孔径0.1μm以下の範囲にある代表的なピークの値（気孔径）が示されている。セルの作製：上記テフロンシート上に形成した触媒層（触媒層21及び触媒層31）を、固体高分子膜上にホットプレス（150℃、60sec）で接合した。

【0046】そして、テフロンシートを剥離し、触媒層（触媒層21及び触媒層31）の上に、ガス拡散層（ガス拡散層22及びガス拡散層32）を押し当てて接合することによって、セルを作製した。【比較例】上記実施例のセルと同様にして、表1に示すカーボン粉末を用いて比較例のセルを作製すると共に、その触媒層及びガス拡散層の気孔径分布を測定した。

【0047】（発電試験）上記実施例及び比較例の各セルを用いて、以下の運転条件で運転し、セル電圧（mV）を測定した。

電流密度 : 0.3 A/cm<sup>2</sup>

セル温度 : 70℃

燃料ガス : H<sub>2</sub>

酸化剤ガス : 空気

燃料ガス利用率 : 70%

酸化剤ガス利用率 : 40%

燃料ガス加湿温度 : 70℃

酸化剤ガス加湿温度 : 70℃

なお、上記の運転条件は、加湿量が比較的大きく、カソード内に水が滞留しやすい条件であって、通常はこのように高加湿の条件下では運転しないが、セル性能を比較するためにこのような条件で行った。

【0048】この実験結果は表1に示す通りであって、表1に示すセル電圧の値は、数時間運転した後、セル電圧が安定したときの値である。実験結果に基づく考察：

12

表1より、比較例のセル1、2では、触媒層の気孔径分布には0.1μm以下のピークが存在するが、ガス拡散層の気孔径分布には0.1μm以下のピークが見られないことがわかる。一方、実施例のセルにおいては、ガス拡散層の気孔径分布及び触媒層の気孔径分布が共に、0.1μm以下のピークを有していることがわかる。

【0049】また表1より、比較例のセル1、2と比べて、実施例のセル3~10は、セル電圧が高いことがわかる。これより、ガス拡散層の気孔径分布及び触媒層の気孔径分布が共に、0.1μm以下のピークを有すると、ガス拡散層の気孔径分布が0.1μm以下のピークを有しない場合と比べて、セル電圧が向上することがわかる。

【0050】また、実施例のセル3~10の中でも、ガス拡散層の気孔径分布及び触媒層の気孔径分布が共に、0.03~0.05μmの範囲内にピークを有するセル3、6、10は、特にセル電圧が良好であることもわかる。次に、実施例のセル3~10について、表1に示されている触媒層のピーク気孔径に対するガス拡散層の0.1μm以下のピーク気孔径の比率（気孔径比）を算出し、この気孔径比と、表1に示されるセル電圧との関係調べた。

【0051】図5は、実施例のセル3~10について、気孔径比とセル電圧との関係をプロットしたものである。図5より、気孔径比が0.5~2.0の範囲内にあるセル3、4、6、7、8、10は、気孔径比がこの範囲外にあるセル5、9と比べて高いセル電圧を示していることがわかる。

【0052】

【発明の効果】以上説明したように、本発明は、触媒層及びガス拡散層が積層されてなる燃料電池用電極において、ガス拡散層及び触媒層を、その気孔径分布が共に0.1μm以下のピークを有するように、好ましくは0.03~0.05μmの範囲にピークを有するように調整することによって、触媒層及びガス拡散層共に、水を移動させる作用が強くなり、触媒層及びガス拡散層の界面付近にも水が滞留しにくくなる。

【0053】また、ガス拡散層の気孔径分布のピークと、触媒層の気孔径分布とのピークとの組み合わせの中に、気孔径の比率が0.5~2.0の範囲内にあるものが含まれていれば、触媒層とガス拡散層との界面における水の移動がスムーズとなるので、更に触媒層及びガス拡散層の界面付近に水が滞留しにくくなる。このように燃料電池用電極において、水の滞留を防止することによって、燃料電池の発電電圧を向上させることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】固体高分子型燃料電池の構成を示す要部組立図である。

【図2】図1に示すセルユニットの概略断面図である。

【図3】アノード及びカソードの内部構造を模式的に示

(8)

特開2001-338651

13

14

す断面模式図である。

【図4】実施例のセル6のガス拡散層についての気孔径分布図である。

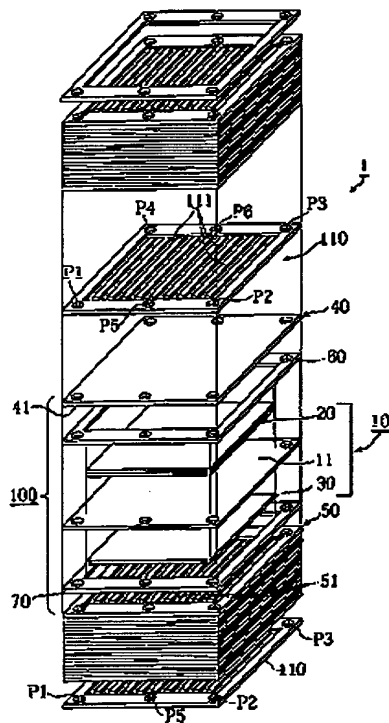
【図5】実施例のセルについて、気孔径比とセル電圧との関係をプロットした特性図である。

【符号の説明】

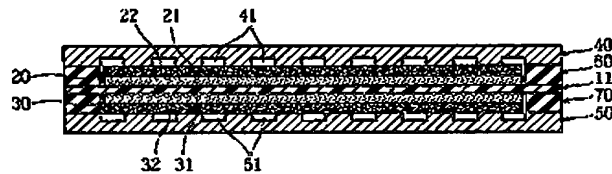
1 固体高分子型燃料電池  
 10 セル  
 11 固体高分子膜  
 20 アノード  
 21 触媒層  
 22 ガス拡散層  
 23 界面  
 30 カソード

\* 31 触媒層  
 32 ガス拡散層  
 33 界面  
 40, 50 セパレータ板  
 41 アノード側チャンネル  
 51 カソード側チャンネル  
 211 気孔  
 220 カーボン繊維  
 221 カーボン粒子  
 10 222 気孔  
 311 気孔  
 320 カーボン繊維  
 321 カーボン粒子  
 \* 322 気孔

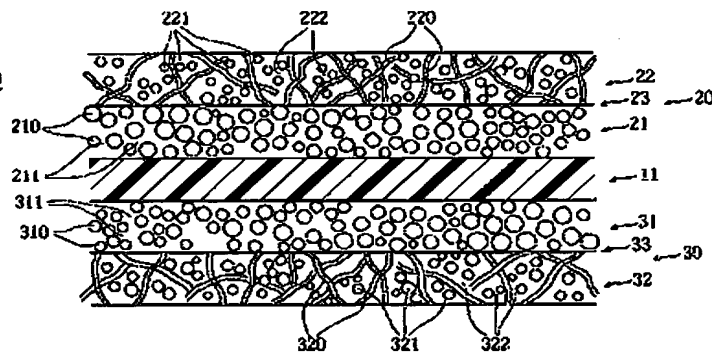
【図1】



【図2】



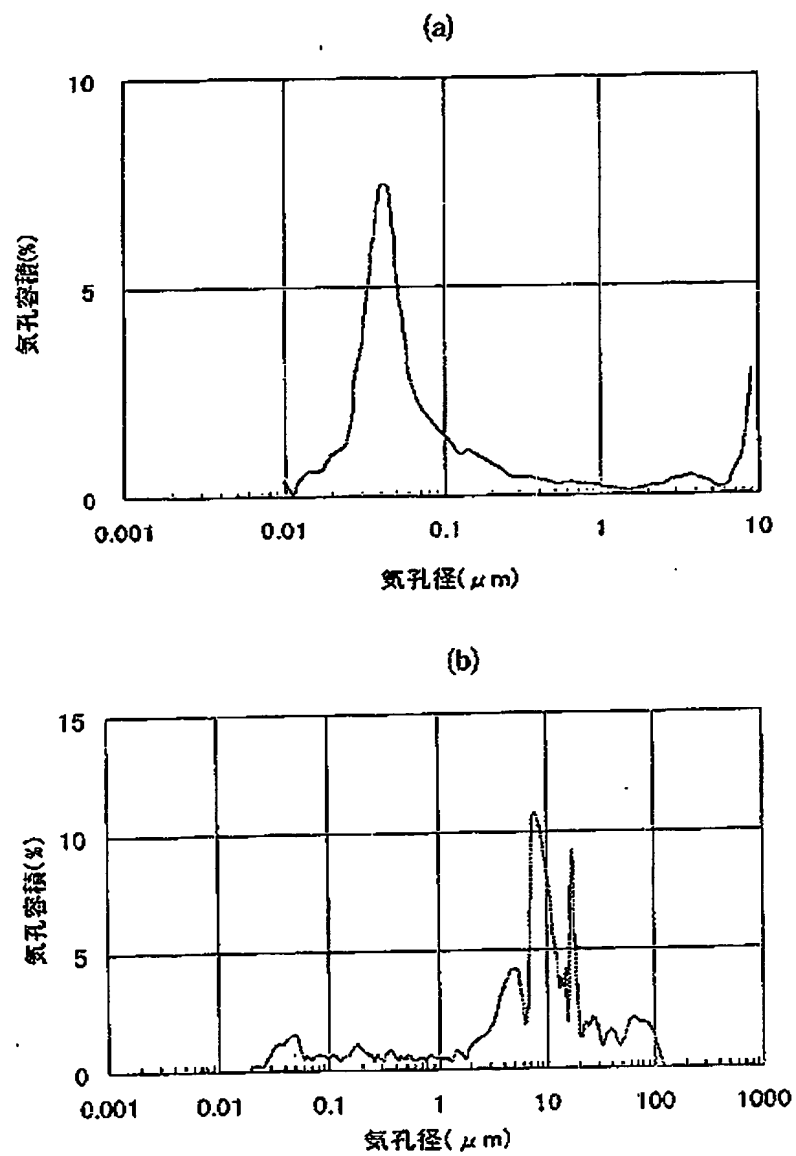
【図3】



(9)

特開2001-338651

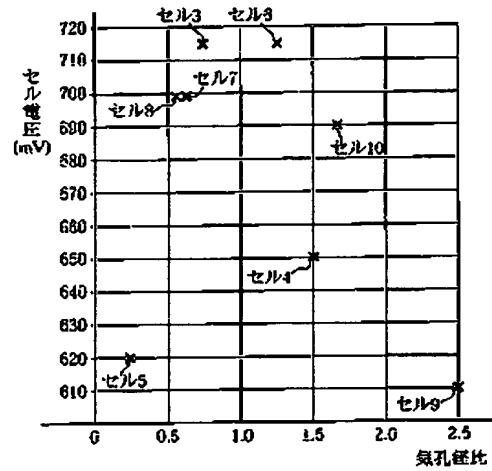
【図4】



(10)

特開2001-338651

〔図5〕




---

 フロントページの続き

(72)発明者 近野 義人  
 大阪府守口市京阪本通2丁目5番5号 三  
 洋電機株式会社内

(72)発明者 米津 育郎  
 大阪府守口市京阪本通2丁目5番5号 三  
 洋電機株式会社内

Fターム(参考) 5H018 AA04 AA06 AA07 AS01 AS02  
 AS03 DD06 EE03 EE05 EE18  
 HH04 HH05  
 5H026 AA06 CC03 CC08

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☒ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**